

04539610

DOCKET NO.: 272997US0PCT

JC17 Rec'd PCT/PTO 17 JUN 2005

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Martin SOHN, et al.

SERIAL NO.: NEW U.S. PCT APPLICATION

FILED: HEREWITH

INTERNATIONAL APPLICATION NO.: PCT/EP03/14187

INTERNATIONAL FILING DATE: December 13, 2003

FOR: SEPARATION OF SOLVENTS FROM A REACTION MIXTURE FROM AN ISOCYANATE SYNTHESIS AND PURIFICATION OF THE SAME

REQUEST FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119
AND THE INTERNATIONAL CONVENTION

Commissioner for Patents
Alexandria, Virginia 22313

Sir:

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicant claims as priority:

<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NO</u>	<u>DAY/MONTH/YEAR</u>
Germany	102 60 027.9	19 December 2002

Certified copies of the corresponding Convention application(s) were submitted to the International Bureau in PCT Application No. PCT/EP03/14187. Receipt of the certified copy(s) by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.

Respectfully submitted,
OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.



Norman F. Oblon
Attorney of Record
Registration No. 24,618
Surinder Sachar
Registration No. 34,423

Customer Number

22850

(703) 413-3000
Fax No. (703) 413-2220
(OSMMN 08/03)

10/530 310

JUN 2003

PCT/EP 03/1487



**PRIORITY
DOCUMENT**
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

REC'D 05 FEB 2004

PCT

**Prioritätsbescheinigung über die Einreichung
einer Patentanmeldung**

Aktenzeichen: 102 60 027.9
Anmeldetag: 19. Dezember 2002
Anmelder/Inhaber: BASF Aktiengesellschaft,
Ludwigshafen/DE
Bezeichnung: Verfahren zur Abtrennung und Reinigung von
Lösungsmittel von einem Reaktionsgemisch
aus einer Isocyanatsynthese
IPC: C 07 C, B 01 D

**Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ur-
sprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.**

München, den 11. September 2003
Deutsches Patent- und Markenamt
Der Präsident
Im Auftrag


G. Schmalz

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Isocyanaten durch Umsetzung von Aminen mit Phosgen im Beisein von inerten organischen Lösungsmitteln in einem Reaktor und anschließende Aufarbeitung des den Reaktor verlassenden Reaktionsgemisches, dadurch gekennzeichnet, dass die Lösungsmittelabtrennung in einem zwei- oder mehrstufigen, vorzugsweise zweistufigen destillativen Verfahren erfolgt und wobei das Lösungsmittel in einem ersten Apparat bei einem Druck von 0,1 bis 15 bar und in einem zweiten oder weiteren Apparaten, bei 1 bis 900 mbar abgetrennt wird, wobei die Kondensationswärme des Lösungsmitteldampfes aus dem ersten Apparat zur partiellen oder vollständigen Verdampfung von Lösungsmittel im zweiten Apparat verwendet wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass als Apparate zur Lösungsmittelabtrennung Destillationskolonnen verwendet werden.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass der Druck im ersten Apparat 0,5 bis 3 bar beträgt.
- 25 4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass der Druck im zweiten Apparat 50 bis 500 mbar beträgt.
5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekenn-
30 zeichnet, dass als Apparat zur Wärmeübertragung vom Brüden des vorhergehenden Apparates auf die Flüssigphase des nachfolgenden Apparates ein Wärmetauscher verwendet wird.
- 35 6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekenn-
zeichnet, dass nachfolgend eine Reindestillation des Lösungsmittels bei Drücken zwischen 0,5 bar und 3 bar durchgeführt wird.
- 40 7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekenn-
zeichnet, dass der Wärmeverbund durch einen Durchlaufverdampfer, vorzugsweise einen Fallfilmverdampfer, Langrohrverdampfer oder Dünnschichtverdampfer realisiert wird.

2

8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass als Lösungsmittel Chlorbenzol, Dichlorbenzol oder Mischungen der beiden oder Toluol verwendet wird.
- 5 9. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, dass das Isocyanat Toluylendiisocyanat (TDI), 4,4'-, 2,4'-, 2,2'-Methylendi(phenylisocyanat) (MDI) sowie Mischungen dieser Isomere oder Polymethylenpolyphenylenpolysiyanat (PMDI) oder Mischungen von MDI und PMDI oder Hexamethylendiisocyanat (HDI) oder Isophorondiisocyanat (IPDI) ist.
- 10

15

20

25

30

35

40

45

Verfahren zur Abtrennung und Reinigung von Lösungsmittel von
einem Reaktionsgemisch aus einer Isocyanatsynthese

5 Beschreibung

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Abtrennung des Lösungs-
mittels bei der Herstellung von aromatischen oder aliphatischen

10 Isocyanaten.

Isocyanate werden, insbesondere als Ausgangsprodukte für die Her-
stellung von Polyurethanen, seit langem in großer Menge herge-
stellt. Bei den aromatischen Isocyanaten haben Methylendi(phenyl-
15 isocyanat) (MDI) und dessen höhere Homologen, und Toluylendiiso-
cyanat (TDI), bei den aliphatischen Hexamethylendiisocyanat (HDI)
und Isophorondiisocyanat (IPDI) die größte technische Bedeutung.

Die kontinuierliche Herstellung von organischen Isocyanaten durch
20 Reaktion von primären organischen Aminen mit Phosgen ist vielfach
beschrieben und wird im großtechnischen Maßstab durchgeführt
(s. z.B. Ullmanns Enzyklopädie der Technischen Chemie, Band 7
(Polyurethane), 3. neubearbeitete Auflage, Carl Hanser Verlag,
München-Wien, S. 76ff (1993)).

25

Die Herstellung von Isocyanaten aus den entsprechenden Aminen
durch Phosgenierung erfolgt zumeist in Rührkesseln, in Rühr-
kesselkaskaden, in mit Füllkörpern gefüllten Reaktionssäulen oder
Reaktionskolonnen oder in ungefüllten Kolonnen. Oftmals ist eine
30 Kreislauffahrweise erforderlich, um genügend Verweilzeit für
einen vollständigen Umsatz bei begrenztem Reaktionsvolumen
(Holdup) zu schaffen. Da die Reaktion von Amin und Phosgen in der
Flüssigphase sehr schnell ist, wird für die erste Reaktionsstufe
häufig ein Mischreaktor eingesetzt. Zu den bekannten Misch-
35 aggregaten gehören vor allem Düsen, wie beispielsweise Ring-
schlitzdüse, Ringlochdüsen, Glattstrahlmischdüsen, Fächerstrahl-
düsen, Winkelstrahlkammerdüsen, Dreistromdüsen, Gegenstrommisch-
kammern, Staudüsen oder Venturimischdüsen.

40 Die Isocyanatsynthese erfolgt häufig in der ersten Stufe bei sehr
tiefer und in der zweiten bei deutlich höherer Temperatur in
einem Verweilzeitapparat (Kalt-Heiß-Phosgenierung) (W. Sieffken,
Liebigs Analen der Chemie 562 (1949), Seite 96). Zuerst wird bei
tiefer Temperatur, insbesondere 0°C oder Raumtemperatur, maximal
45 60°C, eine Suspension der Zwischenprodukte Carbamoylchlorid und
Aminhydrochlorid hergestellt, die dann bei höheren Temperaturen,
insbesondere 100 bis 200°C, in einem Verweilzeitapparat zum Iso-

cyanat umgesetzt wird. Solche zweistufige Verfahren werden beispielsweise in Ullmanns Enzyklopädie der Technischen Chemie, Band 7 (Polyurethane), 3. neubearbeitete Auflage, Carl Hanser Verlag, München-Wien, S. 76ff (1993), beschrieben.

5

Zur Erzielung hoher Ausbeuten werden die Synthesen von Isocyanaten aus Aminen und Phosgen in der Regel in organischen Lösungsmitteln durchgeführt, die sich gegenüber den Einsatzstoffen und den Endprodukten inert verhalten. In einer besonderen Ausführungsform der Isocyanatsynthese kann auch das in dem betreffenden Verfahren hergestellte Isocyanat als Lösungsmittel sowohl für das Amin als auch für das Phosgen verwendet werden.

Als inerte organische Lösungsmittel für die Herstellung von Isocyanaten werden vorzugsweise chlorierte aromatische Kohlenwasserstoffe wie Dichlorbenzol, Chlorbenzol, Trichlorbenzol oder aromatische oder aliphatische Kohlenwasserstoffe wie Toluol, Xylool, Benzol, Pentan, Hexan, Heptan, Octan, Cyclohexan, Biphenyl, Ketone wie 2-Butanon, Methylisobutylketon, Ester wie Diallylisophthalate, Ethylacetat, Butylacetat, Nitrile wie Acetonitril, oder Sulfolan u.a. verwendet.

Nach erfolgter Reaktion wird das in der Regel leichter als das Isocyanat siedende Lösungsmittel vom Isocyanat und einem eventuellen Rückstand abgetrennt und destillativ aufgearbeitet. Im Falle von Toluylendiisocyanat (TDI) erfolgt anschließend eine destillative Abtrennung des Isocyanats vom Rückstand und eine Reindestillation des Isocyanats oder eine Reinigung durch Kristallisation. Es können außerdem weitere Trennoperationen durchgeführt werden, um im Falle von TDI, und MDI das Isomeren- oder im Falle von Polymer-MDI das Oligomerengemisch in einzelne Fraktionen mit unterschiedlicher Isomeren- und Oligomerenzusammensetzung zu zerlegen. TDI liegt meist als Gemisch der beiden Isomere 2,4-TDI und 2,6-TDI vor, in der Regel als 80:20 oder 65:35 Mischung.

Das bei der Umsetzung von aliphatischen oder aromatischen Aminen mit Phosgen zu den entsprechenden Isocyanaten anfallende Gemisch aus Chlorwasserstoff und Phosgen kann ebenfalls noch mehr oder weniger große Mengen Lösungsmittel enthalten. Dieses Gemisch wird dann in der Regel in den meist gasförmig anfallenden Chlorwasserstoff und ein in der Regel flüssig anfallendes Gemisch aus Phosgen und gegebenenfalls. Lösungsmittel aufgetrennt. Das Phosgen bzw. Phosgen-Lösungsmittelgemisch wird dann in die Reaktion zurückgeführt. Es wird in der Regel ein mehr oder weniger großer Phosgenüberschuß eingesetzt, so daß das eingesetzte Phosgen trotz hoher chemischer Ausbeuten der Amin-Phosgen-Reaktion im Falle der

Isocyanatproduktion nicht vollständig mit dem Amin abreagiert. Lösungsmittel in diesem Rückführphosgenstrom stört in der Regel nicht, es führt allerdings zu einer Verdünnung des Phosgenstroms.

- 5 Dagegen muß das Isocyanat vollständig aus dem Lösungsmittel, das in die Reaktion zurückgeführt wird, abgetrennt werden, um Nebenreaktionen des Isocyanats mit dem Amin auszuschließen.

In US 3410888 wird ein Verfahren zur Isolierung eines aromatischen Diisocyanats aus einer Reaktionsmischung beschrieben, wobei das Isocyanat zwei Phenylkerne besitzt und die Isocyanatgruppen an Kohlenstoffatomen unterschiedlicher Phenylkerne gebunden sind. Dies betrifft 4,4'-, 2,4'-, 2,2'-Methylendi(phenylisocyanat) (MDI) sowie Mischungen dieser Isomere oder Polymethylenpolyphenylpolyisocyanat (PMDI). Das beanspruchte Verfahren umfaßt die Schritte erstens der Reaktion eines entsprechenden aromatischen Diamins mit Phosgen und der destillativen Abtrennung eines Teils des so hergestellten aromatischen Isocyanats bei der Lösungsmittelabtrennung, zweitens der Überführung des Destillationsrückstandes (Sumpfproduktes) in eine zweite Destillationseinrichtung, über deren innere Oberfläche der Rückstand als dünner Film verteilt ist und deren Temperatur und Druck ausreichend sind, um eine Verdampfung des Isocyanats zu bewirken, und drittens der Entnahme des Dampfes (Brüden) aus dieser zweiten Destillationseinrichtung, der im wesentlichen reich an Isocyanat ist. Der Dampf wird kondensiert und das Isocyanat gelagert. Als mögliche Destillationseinrichtung werden Kletterfilmverdampfer, Fallfilmverdampfer u.ä. genannt. Das Lösungsmittel in der Isocyanat-synthese hat üblicherweise einen niedrigeren Siedepunkt als das Isocyanat, er ist bevorzugt mindestens 30°C niedriger. Bei einer kleineren Siedepunktsdifferenz kann in der Lösungsmittelabtrennung ein Teil des hergestellten Isocyanats zusammen mit dem Lösungsmittel mitabgetrennt werden. Daran schließt sich die Destillation des als Rückstand erhaltenen Rohisocyanats im Dünn-schichtverdampfer an. Die teilweise Abtrennung des Isocyanats in der Lösungsmittelabtrennung hat den Vorteil, dass unerwünschte Mittelsieder, wie gefärbte Verunreinigungen oder Komponenten, deren Siedepunkt zwischen dem des Isocyanats und dem Lösungsmittel liegt, in der Lösungsmittelabtrennung mitabgetrennt werden. Die Mischung aus dem teilweise abgetrennten Isocyanat und dem Lösungsmittel wird dann wieder als Feed der Lösungsmittel-abtrennung zugeführt, oder sie wird in einer separaten Verdampfung oder fraktionierten Destillation zur Aufkonzentration des Isocyanats zugeführt. Letzteres wird dann als Feed in die Lösungsmittelabtrennung rezykliert.

Nachteilig an diesem Verfahren ist die teilweise Abtrennung des Isocyanats in der Lösungsmittelabtrennung, die eine zusätzliche Reinigung des Lösungsmittels erforderlich macht.

- 5 Ziel der vorliegenden Erfindung ist es, ein Verfahren zur Lösungsmittelabtrennung zu entwickeln, welches eine vollständige Abtrennung des Isocyanats aus dem Lösungsmittel erlaubt und darüber hinaus Einsparungen an Energie erbringt.
- 10 Die Lösung der Aufgabe eines energiesparenden Verfahrens zur Lösungsmittelabtrennung aus einem Reaktionsaustrag der Isocyanat-synthese besteht in einem zwei- oder mehrstufigen, vorzugsweise zweistufigen destillativen Verfahren, wobei das Lösungsmittel in einem ersten Apparat, vorzugsweise einer Destillationskolonne,
- 15 bei 0,1 bis 15 bar, bevorzugt 0,5 bis 3 bar, und in einem zweiten oder weiteren Apparaten, vorzugsweise ebenfalls Destillationskolonnen, bei 1 bis 900 mbar, bevorzugt 100 bis 500 mbar, abgetrennt wird, wobei die Kondensationswärme des Lösungsmitteldampfes, im folgenden auch als Brüden bezeichnet, aus dem ersten
- 20 Apparat zur partiellen oder vollständigen Verdampfung von Lösungsmittel im zweiten Apparat verwendet wird.

Gegenstand der Erfindung ist demzufolge ein Verfahren zur Herstellung von Isocyanaten durch Umsetzung von Aminen mit Phosgen im Beisein von inerten organischen Lösungsmitteln in einem Reaktor und anschließende Aufarbeitung des den Reaktor verlassenden Reaktionsgemisches, dadurch gekennzeichnet, daß die Lösungsmittelabtrennung in einem zwei- oder mehrstufigen, vorzugsweise zweistufigen destillativen Verfahren erfolgt und wobei das Lösungsmittel in einem ersten Apparat, vorzugsweise einer Destillationskolonne, bei 0,1 bis 15 bar, bevorzugt 0,5 bis 3 bar, und in einem zweiten oder weiteren Apparaten, vorzugsweise ebenfalls Destillationskolonnen, bei 1 bis 900 mbar, bevorzugt 50 bis 500 mbar, abgetrennt wird, wobei die Kondensationswärme des Lösungsmitteldampfes, im folgenden auch als Brüden bezeichnet, aus dem ersten Apparat zur partiellen oder vollständigen Verdampfung von Lösungsmittel im zweiten Apparat verwendet wird.

Die Sumpftemperatur in der ersten Kolonne beträgt je nach Druck 40 zwischen 60°C bei 0,1 bar und 270°C bei 15 bar. Die Sumpftemperatur in der zweiten Kolonne beträgt je nach Druck zwischen 75°C bei 1 mbar und 250°C bei 900 mbar.

In der ersten Kolonne wird Lösungsmitteldampf destillativ abgetrennt. Der flüssige Anteil, der als Sumpfaustrag dieser Kolonne anfällt, wird vor oder im zweiten Apparat auf das niedrigere Druckniveau des zweiten Apparates entspannt und dem zweiten Appa-

rat zugeführt, in welchem das restliche Lösungsmittel abgeführt wird. Die Übertragung der Energie des Brüden aus dem ersten Apparat auf die Flüssigphase des zweiten kann insbesondere unter Verwendung eines Wärmetauschers, beispielsweise eines Kreuzstromapparates, erfolgen, in dem der kondensierende Brüden die Verdampfung der flüssigen Phase aus dem zweiten Apparat der zweiten Kolonne bewirkt. Dabei können die Brüden und Flüssigphase im Gleich- oder im Gegenstrom geführt werden. Der Brüden kann im Mantel- oder im Produktraum des Wärmetauschers kondensiert werden. Es ist hierbei nicht erforderlich, einen speziellen Wärmetauscher zu verwenden. Es kann ein beliebiger Apparat, der Wärmeübertragungsfläche zur Verfügung stellt, verwendet werden. Die Flüssigkeit der zweiten Kolonne kann aus dem Sumpf, von einem Boden, einem Flüssigkeitssammler oder aus dem Zulauf entnommen werden. Bevorzugt wird die Flüssigkeit von einem Boden oder Sammler unterhalb des Zulaufs der zweiten Kolonne entnommen. Beide Kolonnen sind vorzugsweise mit einem Verstärkungsteil ausgerüstet. Die zweite Kolonne kann auch mit einem Abtriebsteil ausgestattet sein.

Als Einbauten kommen die bekannten Einbauten von Destillations- und Rektifikationskolonnen zum Einsatz. Es kann beispielsweise eine Boden- oder eine Packungskolonne zum Einsatz kommen. Als Böden können beispielsweise Sieb-, Ventil-, Glocken- oder Dual-flowböden und bei Packungen z.B. Blech-, Gewebe- oder Gitterpackungen aller Art verwendet werden. Besonders vorteilhaft sind Packungen, da sie einen geringen Druckverlust aufweisen. Füllkörperschüttungen sind zwar weniger geeignet, aber nicht prinzipiell ausgeschlossen. Als Packungstypen können beispielsweise Sulzer BX, Sulzer CY, Sulzer Mellapak, Sulzer Mellapak Plus, Montz A3, Glitsch 4A, Kühni Rombopak, und andere verwendet werden. Als Sumpfumlaufverdampfer können prinzipiell alle Arten von Verdampfertypen eingesetzt werden, wobei Fallfilmverdampfer oder Dünnschichtverdampfer besonders vorteilhaft sind, da sich mit ihnen eine produktionsende Verdampfung realisieren lässt und sie auch bei kleinen Temperaturdifferenzen zwischen heißer und kalter Seite betreibbar sind. Der Wärmeverbund kann auch in Form einer Zwischenverdampfung an der zweiten Kolonne ausgeführt werden. Bei einer Zwischenverdampfung wird die Flüssigkeit entsprechend von einem Boden oder Sammler der Kolonne entnommen und einem Wärmetauscher zugeführt. Aus energetischen Gründen kann es vorteilhaft sein, der erfindungsgemäß verwendeten Kolonne eine ein- oder mehrstufige Verdampfung vorzuschalten. Bei der Vorverdampfung wird der Flüssigkeitszulauf einem Verdampfer zugeführt und dann durch teilweise oder ganz verdampft. Der Dampf- und gegebenenfalls verbliebene Flüssigkeitsstrom wird der Kolonne zugeführt. Sowohl die Vorverdampfung als auch die Zwischenverdampfung können

ein- oder mehrstufig ausgeführt werden. Als Verdampfer können ein Durchlaufverdampfer, vorzugsweise ein Fallfilmverdampfer, Langrohrverdampfer oder Dünnschichtverdampfer verwendet werden. Der Kopfkondensator kann extern gestaltet oder in die Kolonne integriert sein. Es können Rohrbündel- wie auch Plattenapparate zum Einsatz kommen.

Das beschriebene Verfahren kann auch mehrstufig, das heißt unter Verwendung von mehr als zwei Kolonnen, ausgeführt werden bei 10 dieser Ausführungsform wird bei jedem folgenden Apparat auf ein gegenüber dem vorherigen Apparat niedrigeres Druckniveau entspannt und ein- oder mehrmals die Energie des Brüden zur partiellen oder vollständigen Verdampfung des Flüssigphase des nachfolgenden Apparates verwendet. Ein Verfahren mit mehr als 5 Stufen 15 ist aus Gründen der Investitionskosten nicht mehr sinnvoll, aber nicht prinzipiell ausgeschlossen.

Zur Durchführung der erfindungsgemäßen Abtrennung der Lösungsmittel werden, wie oben dargelegt, vorzugsweise Destillationskolonnen eingesetzt. Es ist jedoch auch möglich, einstufige 20 Apparate, wie zum Beispiel Flashapparate oder Verdampfer, einzusetzen.

Im erfindungsgemäßen Verfahren wird in der Lösungsmittelabtrennung kein Isocyanat zusammen mit dem Lösungsmittel entnommen, sondern das Ziel der Destillation ist eine saubere Abtrennung des Lösungsmittels unter Minimierung des Isocyanatgehalts. Falls erforderlich, werden in einer weiteren Reinigungsstufe des Lösungsmittels nur noch Leichtsieder abgetrennt.

30 Dadurch ist es möglich, eine vollständige Abtrennung des Lösungsmittels vom Reaktionsgemisch vorzunehmen, so dass es ohne weitere Aufarbeitung oder eine zusätzliche Reinigung wieder in den Herstellungsprozeß der Isocyanate zurückgeführt werden kann. Durch 35 die Nutzung der Brüden zur Verdampfung des Reaktionsgemisches kann das Verfahren energetisch vorteilhaft betrieben werden.

Das erfindungsgemäße Verfahren kann besonders vorteilhaft zur Aufarbeitung des Lösungsmittels bei der Herstellung von TDI, MDI 40 und HDI eingesetzt werden. Als Lösungsmittel bei der Herstellung von TDI, MDI und HDI können Chlorbenzol, Dichlorbenzol oder Mischungen der beiden oder Toluol verwendet werden.

Die Erfindung soll an dem nachstehenden Beispiel näher erläutert 45 werden.

Beispiel:

6,14 kg/h eines Reaktionsaustrags aus der Synthese von Toluylendiisocyanat (TDI) ausgehend von Toluylendiamin (TDA) und Phosgen wurden dem unteren Teil einer Destillationskolonne mit 50 mm Durchmesser zugeführt. Die Kolonne ist mit 6 Schüssen Gitterpackung (Kühni Rombopak 9M, Länge eines Schusses 630 mm) gepackt. Die Sumpftemperatur betrug 150°C, der Kopfdruck 1,3 bar abs. und die Kopftemperatur 136°C. Als Sumpfumlaufverdampfer wurde ein Rohrbündelapparat mit 13 Rohren verwendet. Die Zusammensetzung des Zulaufs (Reaktionsaustrags aus der Isocyanatsynthese) war 5,1 kg/h (82 Gew.-%) Chlorbenzol, 1,0 kg/h (16 Gew.-%) TDI inklusive schwersiedender TDI-Homologen, 0,01 kg/h (0,16 Gew.-%) CCl₄, 0,01 kg/h (0,16 Gew.-%) CHCl₃, - 0,004 kg/h (0,06 Gew.-%) Chlorwasserstoff, geringe Mengen Phosgen, und chlorierte Nebenkomponenten sowie kleinere Mengen Leichtsieder. Über Kopf der ersten Kolonne wurden 2,7 kg/h gasförmig entnommen und einem Wärmetauscher (Kreuzstromapparat) zugeführt. In diesem Wärmetauscher wurde gleichzeitig der Zulauf zu einer zweiten Kolonne durch diesen Brüdenstrom vorerhitzt und partiell verdampft. Das im Wärmetauscher anfallende Kondensat des Brüden aus der ersten Kolonne wurde zum größten Teil (1,7 kg/h) als Rückführlösungsmittel in die Isocyanatsynthese zurückgeführt und zu einem kleineren Teil (1,0 kg/h) als Rücklauf auf den Kopf der ersten Kolonne gegeben.

Am Sumpf der ersten Kolonne wurden 4,44 kg/h entnommen und dem genannten Wärmetauscher, der sich im Zulauf der zweiten Kolonne befand, zugeführt. Der Zulauf befand sich im Mittelteil, d.h. zwischen Abtriebs- und Verstärkungsteil der zweiten Kolonne. Die zweite Kolonne hatte ebenfalls einen Durchmesser von 50 mm Durchmesser und besaß die gleiche Packung wie die erste Kolonne. Die Sumpftemperatur dieser zweiten Kolonne betrug 183°C, der Kopfdruck 120 mbar abs. und die Kopftemperatur 68°C. Als Sumpfumlaufverdampfer diente ein Rohrbündelapparat mit 13 Rohren. Am Sumpf wurden 1,0 kg/h (97,6 Gew.-%) TDI inklusive schwersiedender TDI-Homologen, und 0,01 kg/h (1 Gew.-%) chlorierte Nebenkomponenten abgezogen. Dieser Strom wurde anschließend einer TDI-Reindestillation zugeführt. Am Kopf der zweiten Kolonne fielen 3,4 kg/h (99,3 Gew.-%) Chlorbenzol, 0,01 kg/h (0,3 Gew.-%) CCl₄, 0,01 kg/h (0,3 Gew.-%) CHCl₃, 0,004 kg/h (0,1 Gew.-%) HCl, und geringe Mengen Phosgen und geringe Mengen anderer Leichtsieder an. Dieser Strom wurde kondensiert und ebenfalls als Rückführlösungsmittel in den Reaktionsteil der TDI-Synthese zurückgeführt. Ein Teil dieses Stromes wurde als Rücklauf auf den Kopf der Kolonne zurückgeführt.

Verfahren zur Abtrennung und Reinigung von Lösungsmittel von
einem Reaktionsgemisch aus einer Isocyanatsynthese

5 Zusammenfassung

Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Herstellung von Isocyanaten durch Umsetzung von Aminen mit Phosgen im Beisein von inerten organischen Lösungsmitteln in einem Reaktor und anschließende Aufarbeitung des den Reaktor verlassenden Reaktionsgemisches, dadurch gekennzeichnet, daß die Lösungsmittelabtrennung in einem zwei- oder mehrstufigen, vorzugsweise zweistufigen destillativen Verfahren erfolgt und wobei das Lösungsmittel in einem ersten Apparat bei einem Druck von 0,1-15 bar und in einem zweiten oder weiteren Apparaten, bei 1-900 mbar abgetrennt wird, wobei die Kondensationswärme des Lösungsmitteldampfes aus dem ersten Apparat zur partiellen oder vollständigen Verdampfung von Lösungsmittel im zweiten Apparat verwendet wird.

20

25

30

35

40

45